

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-213017  
(43)Date of publication of application : 30.07.2003

(51)Int.Cl. C08J 5/24  
B32B 15/08  
B32B 17/04  
// C08L 63:00

(21)Application number : 2002-008766 (71)Applicant : HITACHI CHEM CO LTD  
(22)Date of filing : 17.01.2002 (72)Inventor : ABE NORIHIRO  
OHORI KENICHI  
TAKEDA YOSHIYUKI  
KAKIYA MINORU  
KAMOSHITA SHINICHI

## (54) METHOD FOR PRODUCING PREPREG

### (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method for producing a prepreg having decreased void and dent on the surface of the prepreg or in the prepreg.

SOLUTION: The void and dent on the surface of or in a prepreg are decreased by sandwiching the prepreg with releasable films and evacuating, heating and pressing the product.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]  
[Date of sending the examiner's decision of rejection]  
[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]  
[Date of final disposal for application]  
[Patent number]  
[Date of registration]  
[Number of appeal against examiner's decision of rejection]  
[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]  
[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

BEST AVAILABLE COPY

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-213017

(P2003-213017A)

(43) 公開日 平成15年7月30日(2003.7.30)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	キーワード(参考)
C 0 8 J 5/24	C F C	C 0 8 J 5/24	C F C 4 F 0 7 2
B 3 2 B 15/08		B 3 2 B 15/08	J 4 F 1 0 0
17/04		17/04	A
// C 0 8 L 63:00		C 0 8 L 63:00	Z
審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 5 頁)			

(21) 出願番号 特願2002-8766(P2002-8766)

(22) 出願日 平成14年1月17日(2002.1.17)

(71) 出願人 000004455

日立化成工業株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

(72) 発明者 阿部 紀大

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成  
工業株式会社下館事業所内

(72) 発明者 大堀 健一

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成  
工業株式会社下館事業所内

(72) 発明者 武田 良幸

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成  
工業株式会社下館事業所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 プリブレグの製造方法

(57) 【要約】

【課題】 プリブレグ表面および内部のボイド、凹みを低減する方法を提供する。

【解決手段】 プリブレグを離型性のあるフィルムではさみ、さらに減圧、加熱、加圧してプリブレグ表面及び内部に存在するボイド、凹みを低減する。

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】樹脂ワニスを繊維基材に含浸させ、加熱乾燥して得られたプリプレグの両側に、離型性のフィルムを配し、減圧、加熱、加圧することを特徴とするプリプレグの製造方法。

【請求項2】離型性のフィルムを配し、減圧、加熱、加圧する際の加熱温度が、プリプレグに含浸された樹脂の軟化温度以上であることを特徴とするプリプレグの製造方法。

【請求項3】上記製造方法により得られたプリプレグを用いて得られる金属箔積層板およびプリント配線板。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、プリプレグの製造方法に関する。

##### 【0002】

【従来の技術】電子機器の小型、軽量、高速、高機能化の要求に対して、半導体は集積度がますます増大し、多ピン、狭ピッチ化が進んでいる。一方、半導体実装方式もQFP等のパッケージを用いた実装方式に加え、半導体をベアチップのまま基板上に搭載するフリップチップ実装も実用化されており、微細化、多様化の傾向を示している。このような状況の中で、プリント基板もさらなる基板サイズの縮小や軽量化、高密度配線化を実現しなければならない。これまで、一般的に用いられてきた多層基板は、ドリル穴加工によって形成された貫通穴を介して、銅めっきにより層間を電氣的に接続しているスルーホール構造である。しかしながら、基板の高密度化、高多層化が進むにつれて、スルーホール数はますます増加し、スルーホール自体が基板の小型化に対して障害となってきた。このような課題に対し、多層基板業界では種々の新しい多層基板が開発されている。まず、現状のドリルを用いた銅めっきスルーホール基板技術の延長上にある技術として、SVH (Semi-Buried Via Hole) 多層基板がある。SVH基板は、貫通スルーホールだけでなく、表層部だけビア接続を行う方法で、貫通スルーホール基板に比べ高密度な配線が可能となる。この方法によれば、表面には挿入部品用の貫通穴しか存在せず、高密度な部品実装が可能となる。しかし、これらの技術はこれまでの多層化技術の改良であり、今後の小径穴明けに対してドリル加工が困難となり、今以上にドリル加工のコスト比率が高くなることや、銅めっきが必要な点は変わらない。

【0003】そこで、IVH (Interstitial Via Hole) によって任意の層間の電氣的接続が可能であり、導電ペーストを用いるため銅めっきが不要なプリント配線板の製造方法が提案されている。この手法により製造される多層プリント配線板は、下記工程により製造されるため(図1参照)、すべての層間でIVH構造が可能であり、部品ランド直下の層間接続をとることも可能とな

る。さらに、めっきスルーホールが全くなく、どの層をも任意な接続が可能である。従って、小型化が可能であり、配線長が短くなり、高速回路対応にも適している。

(1) プリプレグに対し、レーザーによりビア加工を行う。

(2) ビアに導電性ペーストを充填。

(3) 銅箔積層(熱プレス)

(4) パターンニング(エッチング)

(5) スタッフ

(6) 多層化(熱プレス)

(7) パターンニング(エッチング)

##### 【0004】

【発明が解決しようとする課題】よって、Bステージ状態のプリプレグに穴明けし、導電ペーストを充填した後に、積層(熱プレス)を行うこの工法は、プリプレグ表面または内部にボイドや凹みが存在する場合、積層時の樹脂流れ等により導電ペーストがボイドや凹みに流れ込み、滲みが発生する恐れがある。導電ペーストが滲んだ場合、隣接するビアや近傍の回路とのショート、電食による不具合等が発生する可能性があるため、プリプレグの表面は、ボイドや凹みが極力ないことが望まれる。しかしながら、繊維基材に樹脂ワニスを含浸させて加熱乾燥して得られるプリプレグは、加熱により樹脂ワニス中の溶剤分を揮発させる都合上、溶剤分の急激な揮発により、プリプレグ表面にボイドや発砲状の凹みを生じることが少なくない。プリプレグ表面のボイドや凹みを低減するには、塗工条件の調整や高沸点溶剤の適用等の手法がある。塗工条件の調整は、加熱乾燥初期の温度を低く抑え、溶剤の急激な揮発を防ぐものであるが、樹脂ワニスの樹脂分、粘度、比重、温度により繊維基材への含浸状態や表面状態が左右されるため、ボイドや凹みの状態のばらつきが大きく、効果も完全なものとはなりにくい。また、高沸点溶剤の適用は、高沸点溶剤の沸点の高さを利用して溶剤の急激な揮発を抑えるものであるが、プリプレグへの残留揮発分の増加を招き、耐熱性の低下等の問題を生じるため、あまり沸点の高いものが使用できないため、効果が得られにくい。

##### 【0005】

【課題を解決するための手段】本発明では、プリプレグの両側に離型性のフィルムを配し、その後減圧し、プリプレグに含浸された樹脂の軟化温度以上に加熱し、加圧することによって、プリプレグ表面に生じたボイドや凹みを低減させることを特徴とする。

##### (1) プリプレグ

適用されるプリプレグは、何ら限定されるものではなく、使用される基材はガラス繊維の織布、不織布、有機繊維の織布または不織布等が挙げられ、基材に含浸される樹脂ワニスには熱硬化性樹脂を用いることができ、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリイミド樹脂等が挙げられ、それらを変性または混合しても良く、また必要に

応じて、有機および無機の充填剤を配合しても良い。

#### (2) 離型性フィルム

離型性フィルムは、何ら限定されるものではないが、プリブレグの軟化点以上に加熱するため、プリブレグと軟化反応を起こさず、使用後に剥離し易いものが望ましい。

#### (3) 減圧条件

減圧条件は10～0.1hPaが望ましい。大気圧～10hPaでは、真空度が低いためボイドや凹み内の空気を抜くことが難しく、0.1hPa以下では、温度条件、加圧条件にもよるが、真空度が高いため密着が強くなりすぎ、フィルムの粘着が起こり易くなる。

#### (4) 加圧圧力

加圧圧力は高いほどボイドや凹みを埋め込む効果が大きい、高すぎると樹脂の流れ出しが多くなり、プリブレグの樹脂量が減少してしまう。よって、0.3～3.0MPa程度が好ましい。

#### (5) 加熱温度

原理上プリブレグの軟化温度以上で効果が得られるが、あまり温度が高い場合、フィルムへの粘着、硬化反応の進行による硬化性能の著しい変化が起こるため、軟化開始温度+0～50℃程度が望ましいが、特に+20～50℃が好ましい。ここで軟化温度は、下記のように定義した。DuPont社製TMA (Thermomechanical Analyzer) 943にて、5mm×5mmのプリブレグにφ1mmのプロブをのせ、2g荷重し、昇温速度5℃/分で200℃まで温度を上げる。温度が上がり、プリブレグの樹脂が軟化していくと、プロブにかかる圧力でプロブ接触部のプリブレグの厚さが減少する。プリブレグの元の厚さが2%減少した時の温度を軟化温度とした(図2参照)。

#### (6) 加熱時間

ボイドや凹み内の空気が充分抜けきる時間行う必要があるが、長時間加熱を続けると硬化性能が変化するため、30～120秒程度が好ましい。

#### 【0006】

【作用】本発明によれば、プリブレグの両側に離型性のフィルムを配し、減圧することでプリブレグ表面のボイドや凹み内の空気が抜け易い状態にし、そこで軟化温度

・ブロム化エポキシ樹脂

エビコート504B80 (ジャパンエポキシレジン株式会社製、商品名)

90重量部

・クレゾールノボラック型エポキシ樹脂

N-673-80M (大日本インキ化学工業株式会社製、商品名)

10重量部

・硬化剤

ジシアンジアミド

1.5重量部

・硬化促進剤

2-エチル-4-エチルイミダゾール

0.05重量部

これらの組成を、メチルエチルケトン50重量部に混合

以上の温度に加熱し、加圧することによってボイドや凹みを低減することが可能となる。

#### 【0007】

【実施例】以下、本発明の実施例および比較例によって、本発明をさらに具体的に説明するが、本発明は、これらの実施例に限定されるものではない。

#### (1) 実験条件

・使用機器：(株)名機製作所製MLVP-500真空加圧式ラミネータ

・離型性フィルム：Si系の離型剤を塗布した厚さ約25μmのPET (ポリエチレンテレフタレート) フィルムを用いた。

・減圧条件：4hPa

・加圧圧力：1.76MPa

・加熱温度：60℃、90℃、120℃、150℃

・加熱時間：60秒

#### (2) 評価方法

##### ①プリブレグ表面ボイド、凹みサイズ

プリブレグの表面を顕微鏡にて観察し、表面に存在するボイド、凹みの大きさを測定しマーキングする。減圧、加熱、加圧後に同様に観察を行い、マーキングしたボイド、凹みの大きさを測定する。

##### ②フィルムの粘着

フィルムへの粘着は、処理後にフィルムを剥離し、剥離したフィルムを観察し、樹脂の粘着の有無を調べた。

##### ③硬化時間

プリブレグをもみほぐして得られた樹脂粉0.5gを170℃に加熱した熱盤上に載せ、溶融した樹脂を一定速度(2回/秒)で攪拌し、溶融した樹脂が硬化するまでの時間。

##### ④軟化温度

DuPont社製TMA (Thermomechanical Analyzer) 943にて、5mm×5mmのプリブレグにφ1mmのプロブを載せ、2g荷重し、昇温速度5℃/分で200℃まで温度を上げる。プリブレグの元の厚さが2%減少した時の温度を軟化温度とした(図2参照)。

#### 【0008】実施例1～実施例2

熱硬化性樹脂として、以下の組成のものを用いた。

し、シリカ60重量部を配合し、樹脂ワニス中の溶剤以

外の固形分が66.7重量%となるように樹脂ワニス进行调整した。繊維基材として、坪量210g/m<sup>2</sup>、幅1050mm、厚さ0.2mmのガラス織布(MIL規格:7629タイプ)を用い、ガラス織布重量と樹脂硬化物重量(無機充填剤を含む)の合計を100重量%とした時の樹脂硬化物の割合が48重量%となるように調

・プロム化エポキシ樹脂

エピコート504B80(ジャパンエポキシレジン株式会社製、商品名)

90重量部

・クレゾールノボラック型エポキシ樹脂

N-673-80M(大日本インキ化学工業株式会社製、商品名)

10重量部

・硬化剤

ジシアンジアミド

1.5重量部

・硬化促進剤

2-エチル-4-メチルイミダゾール

0.05重量部

これらの組成を、メチルエチルケトン50重量部に混合し、シリカ30重量部を配合し、樹脂ワニス中の溶剤以外の固形分が66.7重量%となるように樹脂ワニス进行调整した。繊維基材として、坪量210g/m<sup>2</sup>、幅1050mm、厚さ0.2mmのガラス織布(MIL規格:7629タイプ)を用い、ガラス織布重量と樹脂硬化物重量(無機充填剤を含む)の合計を100重量%とした時の樹脂硬化物の割合が45重量%(無機充填剤を含む)となるように調整し、9m/分の速度で、含浸して170℃の乾燥塔内を通過させプリプレグを作製した。真空ラミネータの加熱温度を90℃、および120℃の2条件にて、加熱、減圧(4hPa)、加圧(1.

76MPa)を行った。9m/分の速度で、含浸して170℃の乾燥塔内を通過させプリプレグを作製した。真空ラミネータの加熱温度を90℃、および120℃の2条件にて、加熱、減圧(4hPa)、加圧(1.76MPa)を行った。

【0009】実施例3～実施例4

熱硬化性樹脂として以下の組成のものを用いた。

76MPa)を行った。

【0010】比較例1～比較例2

実施例1～2で得られたプリプレグにおいて、加熱温度を60℃および150℃の2条件とした。実験結果を表1に示す。

【0011】比較例3～比較例4

実施例3～4で得られたプリプレグにおいて、加熱温度を60℃および150℃の2条件とした。実験結果を表1に示す。

【0012】

【表1】

項 目	プリプレグ 樹脂軟 化温度	加熱 温度 (℃)	ボイド、凹み径μm		フィル ムへの 粘着	硬化時間(秒)	
			処理前	処理後		処理前	処理後
実施例1	72℃	90	500	200	なし	118	115
実施例2		120	～600	0	なし		113
実施例3	69℃	90	150	0	なし	121	120
実施例4		120	～200	0	少		117
比較例1	72℃	60	500	500 600	なし	118	117
比較例2		150	～600	0	大		87
比較例3	69℃	60	150	150 200	なし	121	121
比較例4		150	～200	0	大		89

【0013】

【発明の効果】本発明によれば、プリプレグの両側に離型性のフィルムを配した後、減圧し、樹脂の軟化温度以上まで加熱し、その後加圧することにより、プリプレグ表面および内部のボイド、凹みを低減することが可能と

なる。本発明により得られたプリプレグは、表面および内部のボイド、凹みが少ないため、プリプレグに直接穴を開け、導電ペーストを用いて層間接続を行う多層プリント配線板への適用に好適である。

フロントページの続き

(72)発明者 垣谷 稔

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成

工業株式会社下館事業所内

(72)発明者 鴨志田 真一

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成

工業株式会社下館事業所内

Fターム(参考) 4F072 AG03 AG16 AG18 AG19 AL13

4F100 AB01B AB33B AG00 AK01A

AK53 BA02 CA02 DG01A

DG12 DH01A EJ82A EJ86A

EJ97 GB43

THIS PAGE BLANK (USPTO)



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**